

## **PENGARUH RADIASI DAN PANAS TERHADAP KARAKTERISTIK GELAS-LIMBAH, NEW CERAMS, DAN SYNROC-LIMBAH**

**HERLAN MARTONO**

*Pusat Teknologi Limbah Radioaktif – BATAN  
Kawasan Puspitek Serpong, Tangerang 15310, Banten  
Telp. 021.7563142, Faks. 7560927*

### **Abstrak**

**PENGARUH RADIASI DAN PANAS TERHADAP KARAKTERISTIK GELAS-LIMBAH, NEW CERAMS, DAN SYNROC.** Limbah cair aktivitas tinggi dari proses olah ulang bahan bakar nuklir bekas banyak mengandung hasil belah dan sedikit aktinida. Radiasi alfa aktinida dan panas radiasi beta-gamma yang dipancarkan, menyebabkan perubahan karakteristik gelas-limbah, new cerams, dan synroc-limbah. Percobaan pengaruh radiasi alfa dilakukan dengan mendoping  $Pu^{238}$  dan  $Cm^{244}$  dalam gelas-limbah, new cerams, dan synroc-limbah. Radiasi alfa menyebabkan perubahan komposisi yang dapat dideteksi dari perubahan densitas dan kekuatan mekaniknya. Kenaikan laju paparan radiasi alfa, menaikkan perubahan densitas dan kekuatan mekanik. Perubahan densitas dan kekuatan mekanik gelas-limbah kecil sekali, sedangkan laju pelindihan radionuklida meningkat 2-3 kali. Pengaruh radiasi alfa tidak berarti terhadap perubahan densitas dan laju pelindihan new cerams dan synroc-limbah. Percobaan panas radiasi beta-gamma dilakukan dengan memanaskan gelas-limbah, new cerams, dan synroc-limbah. Pada suhu 850 °C selama 50 jam terjadi kristalisasi gelas-limbah, yang menaikkan laju pelindihan radionuklida 20 kalinya. Panas radiasi beta-gamma tidak berpengaruh terhadap new cerams dan synroc-limbah. Berdasarkan ketahanan radiasi dan panas diperoleh new cerams dan synroc-limbah lebih baik daripada gelas-limbah.

*Kata kunci: Efek radiasi, gelas-limbah, new cerams, synroc-limbah.*

### **Abstract**

**EFFECT OF RADIATION AND HEAT ON CHARACTERISTICS OF WASTE-GLASS, NEW CERAMS, AND WASTE-SYNROC.** High level liquid waste from the spent nuclear fuel reprocessing, contains of much fission products and a little actinide. Alpha radiation of actinides and heat of radiation beta-gamma emitted by waste will change characteristics of waste-glass, new cerams, and waste-synroc. Experiment for effect alpha radiation are conducted by doping  $Pu^{238}$  and  $Cm^{244}$  in the waste glass, new cerams, and waste-synroc. Alpha radiation will change composition which can be detected from the change of density and mechanical strength. Increasing of alpha radiation doses causes increasing of change waste-glass density and mechanical strength. Change of waste-glass density and mechanical strength are not significant, but leaching rate of radionuclide increase 2 – 3 times. Effect of alpha radiation to density and leaching rate of new ceramics and waste-synroc are not significant. Experiment for heat of beta-gamma radiation was conducted with heating waste-glass, new cerams, and waste-synroc. At temperature 850 °C for 50 hours crystallization of waste-glass occurred, so that increasing of leaching rate of radionuclide is 20 times. Effect heat of beta-gamma radiation is not significant to new cerams and waste-synroc. Based on radiation and heat resistance, then new cerams and waste synroc are better than waste glass.

*Keywords: Radiation effect, waste-glass, new-cerams, waste-synroc.*

### **PENDAHULUAN**

Imobilisasi limbah cair aktivitas tinggi (LCAT) dari ekstraksi siklus I proses olah ulang

dapat dilakukan dengan gelas, new cerams, dan synroc. Kandungan LCAT tersebut sebagian besar adalah hasil belah dan sedikit aktinida. Pada saat ini Republik Korea menggunakan

proses vitrifikasi untuk imobilisasi limbah aktivitas rendah dan sedang<sup>[1]</sup>. Pertimbangan penggunaan proses vitrifikasi tersebut adalah reduksi volume, kandungan limbah, dan faktor keselamatan yang tinggi, serta mahalannya lahan untuk disposal. Proses vitrifikasi adalah proses yang sangat mahal, karena mahalannya harga lahan di Korea, tetapi kalau diperhitungkan biaya pengelolaan (pengolahan, transportasi, disposal, dan pemantauan) masih jauh lebih murah. Di Korea bahan bakar bekas reaktor dicampur bahan bakar baru untuk dibuat bahan bakar jenis *Direct Use of spent PWR fuel In CANDU (DUPIC)*, sehingga tidak ada limbah aktivitas tinggi.

Beberapa pertimbangan penting pada pemilihan bahan untuk imobilisasi LCAT, yang juga berkaitan dengan penyimpanan lestari(disposal), yaitu<sup>[2]</sup>:

1. Proses pembuatan yang sederhana dan mudah.
2. Kandungan limbah (*waste loading*).
3. Ketahanan kimia (laju pelindihan).
4. Kestabilan terhadap radiasi.
5. Kestabilan terhadap panas.
6. Integritas fisik.

Berdasarkan atas pertimbangan di atas dan ketahanannya dalam jangka lama, maka gelas borosilikat telah digunakan untuk imobilisasi LCAT dalam skala industri oleh negara-negara maju. Gelas borosilikat lebih tahan korosi dan mengalami devitrifikasi pada suhu yang lebih tinggi dibandingkan gelas-fosfat yang pernah dikembangkan di Rusia<sup>[3]</sup>. Keuntungan gelas fosfat adalah semua radionuklida dapat larut dan suhu leburnya relatif tidak terlalu tinggi, sekitar 900 °C. Gelas aluminosilikat pernah dikembangkan di USA, tetapi tidak digunakan lebih lanjut karena kandungan limbahnya kecil dan suhu leburnya relatif tinggi sekitar 1350 °C<sup>[3]</sup>. Gelas digunakan dalam skala industri karena relatif lebih mudah membuatnya daripada *synroc* serta gelas mempunyai kestabilan dalam jangka lama<sup>[3,4]</sup>. *Synroc* merupakan mineral titanat yang mempunyai ketahanan kimia tinggi. Pengembangan *synroc* untuk imobilisasi LCAT secara simulasi dilakukan di Australia, Inggris, dan Jepang<sup>[3,5]</sup>. *New Cerams* dikembangkan di Jepang yaitu imobilisasi LCAT dengan *super high temperature method* tanpa penambahan bahan matriks tertentu,

sehingga reduksi volumenya sangat besar<sup>[6]</sup>. Pada proses ini terjadi pemisahan Cs<sup>137</sup>, sehingga dapat mengurangi lama penyimpanan sementara dengan sistem pendingin.

Pada makalah ini akan dibahas pengaruh radiasi alfa dan panas akibat radiasi beta gamma terhadap gelas-limbah, *new cerams*, dan *synroc* yang mengandung LCAT.

## PROSES PEMBUATAN GELAS-LIMBAH

Sebelum proses vitrifikasi dilakukan, LCAT telah didinginkan selama 4 tahun, untuk mengurangi aktivitasnya. Walaupun LCAT telah didinginkan, aktivitasnya masih tinggi. Dalam melter LCAT dan bahan pembentuk gelas dilelehkan pada suhu sekitar 1150 °C. Setelah terbentuk gelas-limbah, maka lelehan hasil vitrifikasi dialirkan dari melter dimasukkan ke dalam *canister* (wadah dari baja tahan karat yang berbentuk silinder) pada suhu 1000 °C. Pengelasan tutup *canister* dilakukan, kemudian *canister* didekontaminasi. Tahap selanjutnya pemeriksaan fisik *canister* dilakukan untuk melihat kerusakan *canister* yang meliputi perubahan dimensi dan kebocoran hasil las. Selanjutnya *canister* disimpan di tempat penyimpanan sementara dengan sistem pendingin udara. Sebagai contoh di Jepang, setiap *canister* dengan diameter luar 430 mm, tinggi 1040 mm dan tebal dinding 6 mm mempunyai volume 118 liter. Volume gelas-limbah dalam *canister* 110 liter (93 % volume *canister*) atau gelas- limbah dalam *canister* 300 kg. Banyaknya gelas dan limbah masing-masing adalah 225 kg dan 75 kg dalam *canister*, yang aktivitas totalnya  $4.10^5$  Ci dan melepaskan panas sekitar 1,4 kW<sup>[7]</sup>.

## PROSES PEMBUATAN NEW CERAMS

Proses pembuatan *New Cerams* dengan *superhigh temperature method* (SHTM) bertujuan untuk *recovery* logam yang berguna (golongan platina), pemisahan unsur eksotermik tinggi, dan solidifikasi tanpa penambahan bahan matriks tertentu seperti semen, polimer, gelas, dan keramik. Hasil solidifikasi berupa zat padat hanya dari hasil belah itu sendiri. Pemisahan unsur eksotermik tinggi dari radionuklida dalam limbah aktivitas tinggi berguna untuk menurunkan 30 – 40 % panas

yang dilepas oleh limbah tersebut yaitu dengan sublimasi Cs menjadi gas.

Tahap proses SHTM meliputi kalsinasi, sublimasi, reduksi, dan peleburan. Larutan nitrat dari hasil belah, aktinida, dan produk korosi dikalsinasi pada suhu 700 °C, sehingga menjadi oksida. Proses sublimasi oksida hasil kalsinasi dilakukan pada suhu 1000 °C dalam media gas argon. Unsur Cs dan Rb menguap pada suhu tersebut. Pada suhu 1000 °C selama 1 jam, sekitar 90 % Cs diuapkan. Oksida logam alkali tanah dan oksida lain dari unsur seperti Ru, Te perlu diperhatikan karena titik didihnya rendah. Unsur Ru menyublim dalam bentuk RuO<sub>4</sub>. Unsur Te tidak menyublim dan menyatu dengan Pd membentuk senyawa<sup>[6]</sup>. Oksida unsur platina, unsur transisi, dan unsur non logam direduksi dengan unsur-unsur seperti B, Al, Si, dan Ti. Logam dan oksida hasil belah mempunyai titik leleh yang tinggi. Reduksi oksida logam golongan platina (RuO<sub>2</sub>, RhO<sub>3</sub>, dan PdO) menjadi logam Ru, Rh, dan Pd terjadi pada 1000 °C dalam media gas argon. Reduksi dilakukan dengan titanium nitrida (TIN), menurut reaksi sebagai berikut :



Dengan M adalah Ru, Rh, dan Pd.

Oksida lain yang tereduksi menjadi logam adalah Mo, Te, Se, dan produk korosi<sup>[6,8]</sup>. Partikel logam yang kecil terdispersi dalam oksida hasil belah yang tidak tereduksi. Untuk memisahkan logam dan oksida, semua bahan harus dilebur. Oksida dan logam dilelehkan pada suhu 1600 °C dalam media argon, sehingga fase oksida dan logam dipisahkan menjadi lapisan atas oksida ingot dan lapisan bawah logam ingot. Oksida dipadatkan menjadi padatan yang monolit dengan reduksi volume yang tinggi. Unsur-unsur grup platina *direct recovery* sebagai ingot kira-kira 90 %. Hasil proses ini adalah *New Cerams (Nuclear Rare Earth Waste Ceramics)*.

## PROSES PEMBUATAN SYNROC-LIMBAH

Pembuatan *synroc* dengan *precursor slurry* memberikan reaktivitas yang lebih baik pada kondisi padat dengan terbentuknya fase utama *hollandite*, *zirconolite*, dan *perovskite*, serta sejumlah kecil titan oksida dan paduan

logam. Pembuatan *synroc* dengan *precursor slurry* ini dapat meningkatkan kandungan limbah sampai 30 %<sup>[8,9]</sup>.

Untuk solidifikasi LCAT dengan kandungan utama radionuklida hasil belah yang terkontaminasi aktinida digunakan *synroc* sejenis *zirconolite* (80 %) dengan komposisi *precursor* oksida 50,30 % TiO<sub>2</sub>, 30,50 % ZnO<sub>2</sub>, 2,50 % Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 16,80 % CaO.BaO<sup>[10]</sup>.

*Synroc* mempunyai luas permukaan tinggi dan berfungsi sebagai medium penukar ion jika dicampur dengan LCAT. Hasil *slurry* dikeringkan menjadi *free flowing powder* pada 130 °C dalam drum pengering berputar, kemudian dikalsinasi dalam *vertical kiln* pada 750 °C. Pada tahap ini 2 % logam Ti dimasukkan untuk mempermudah pengendalian proses redoks selama pres panas (*hot pressing*).

*Synroc* dan serbuk *precursor* LCAT dikonversi menjadi keramik monolit yang sangat kompak dengan pres-panas pada suhu 1150 – 1200 °C dan tekanan 500 – 1000 bar. Proses tahap ini adalah pres-panas isostatik (*hot isostatic pressing = HIP*) yang digunakan secara luas pada skala komersial. Reduksi volume limbah yang besar terjadi pada proses ini. Limbah hasil pres-panas (*synroc monoliths*) dikumpulkan dalam *canister*. *Canister* dimasukkan dalam *canister* besar. Jika *canister* besar sudah penuh, ditutup. *Synroc monoliths* dalam *canister* besar ditutup kemudian di *disposal* dalam formasi tanah dalam.

## RADIASI ALFA

Aktinida (uranium, neptunium, plutonium, amerisium, dan curium) di dalam hasil imobilisasi meluruh dengan memancarkan radiasi alfa. Efek radiasi alfa yang dipancarkan aktinida memungkinkan terjadinya reaksi inti, karena partikel alfa dan partikel *recoil* alfa mempunyai energi yang cukup untuk menimbulkan reaksi inti dengan inti atom-atom yang berada dalam struktur gelas, *new cerams* dan *synroc* dengan tumbukan elastik<sup>[2,3]</sup>. Secara eksperimen pengaruh radiasi alfa terhadap hasil imobilisasi dilakukan menggunakan LCAT simulasi yang mengandung isotop aktinida, yaitu Pu<sup>238</sup> (t<sub>1/2</sub> = 87,8 tahun), Cm<sup>242</sup> (t<sub>1/2</sub> = 163 hari), Am<sup>241</sup> (t<sub>1/2</sub> = 433 tahun), dan Cm<sup>244</sup> (t<sub>1/2</sub> = 18,1 tahun). Dengan menggunakan isotop, doping dengan konsentrasi isotop aktinida beberapa kali lebih besar daripada konsentrasi

aktinida yang sesungguhnya di dalam gelas, memungkinkan percepatan efek radiasi alfa dengan faktor  $10^3 - 10^5$ . Radiasi alfa ini dapat mengakibatkan perubahan komposisi, yang dapat diamati dari perubahan densitas dan kekuatan mekanik.

### RADIASI BETA-GAMMA

Sampai periode 30–50 tahun radionuklida hasil belah memancarkan radiasi gamma yang menimbulkan panas yang besar, sehingga suhunya dapat mencapai lebih dari 500 °C yang merupakan suhu transisi gelas (Tg) yaitu perubahan dari lelehan gelas menjadi padat. Tenaga radiasi gamma yang dipancarkan oleh radionuklida hasil belah lebih kecil dari 2 MeV, sehingga tidak mengakibatkan terjadinya reaksi inti. Radiasi beta gamma yang dipancarkan radionuklida dalam gelas-limbah tidak mengakibatkan terjadinya reaksi inti. Pengaruh radiasi beta-gamma yang dipancarkan oleh radionuklida dalam limbah aktivitas tinggi adalah timbulnya panas yang tinggi yang dapat merubah struktur gelas-limbah dari amorf menjadi kristalin yang dikenal dengan devitrifikasi<sup>[3]</sup>. Radiasi beta-gamma tersebut tidak menimbulkan reaksi inti.

### PEMBAHASAN

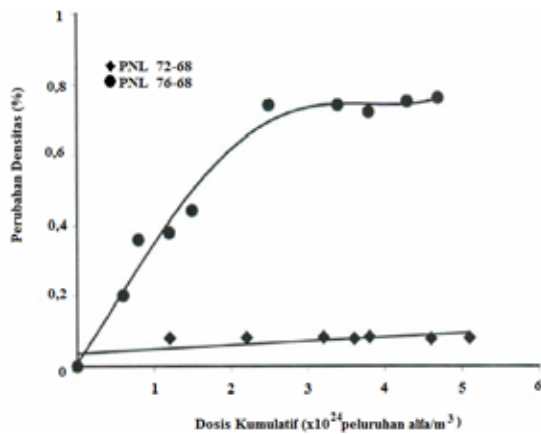
#### Pengaruh Radiasi Alfa Terhadap Gelas-limbah, *New Cerams*, dan *Synroc*

Akibat radiasi alfa, perubahan yang dapat diamati dalam beberapa gelas-limbah milik PNL (Pasific North West Laboratory) dan UK (United Kingdom) yang mempunyai komposisi pada Tabel 1, Gelas-limbah PNL didoping dengan Cm<sup>244</sup> ditunjukkan pada Gambar 1<sup>[3]</sup>. Dari Gambar 1, nampak bahwa perubahan densitas sangat kecil sekali yaitu masih di bawah 1 %. Laju pelindihan gelas-limbah UK 189 didoping dengan Cm<sup>244</sup> dan Pu<sup>238</sup> yang ditunjukkan pada Gambar 2<sup>[3]</sup>. Dari Gambar 2, dengan dosis kumulatif sekitar  $15 \times 10^{24}$  peluruhan alfa/m<sup>3</sup>, laju pelindihan naik sekitar 2–3 kali. Beberapa gelas-limbah menyusut karena pengaruh radiasi alfa, beberapa bertambah densitasnya dan tidak ada yang mengalami perubahan densitas melebihi 1 %. Adanya *microcracking* diamati, tetapi tidak mempengaruhi integritas fisik gelas-limbah, seperti ditunjukkan oleh perubahan densitas

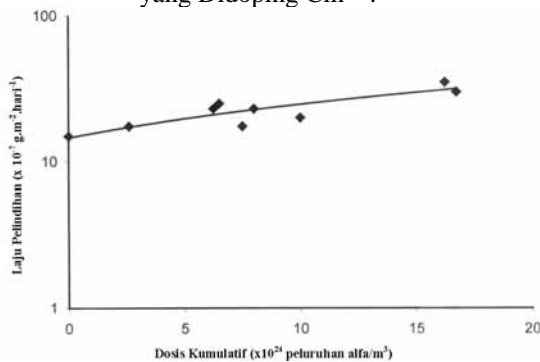
yang mencapai kejenuhan setelah dosis kumulatif sekitar  $5 \times 10^{24}$  peluruhan alfa/m<sup>3</sup> <sup>[2]</sup>. Perubahan kekuatan mekanik yang disebabkan oleh pengaruh radiasi alfa tidak signifikan<sup>[2]</sup>. Kemungkinan dapat terjadi retak (*fracture*) gelas-limbah yang disebabkan oleh sisa tegangan termal yang dapat menaikkan luas permukaan pelindihan. Retak dapat juga disebabkan adanya gelembung gas helium.

Tabel 1. Komposisi Gelas-Limbah PNL 76-68, PNL 72-68, dan UK 189 dengan Kandungan Limbah 20 % Berat<sup>[3]</sup>

Oksida	PNL 76-68 (% berat)	PNL 72-68 (% berat)	UK 189 (% berat)
SiO <sub>2</sub>	39,997	27,263	41,540
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	9,514	11,126	21,870
Li <sub>2</sub> O	-	-	3,690
Na <sub>2</sub> O	12,505	4,053	7,680
K <sub>2</sub> O	-	4,053	-
MgO	-	1,474	6,230
CaO	2,010	1,474	-
SrO	0,377	2,185	0,320
BaO	0,557	2,526	0,380
TiO <sub>2</sub>	2,981	-	-
ZnO	4,991	21,295	-
Ra <sub>2</sub> O	0,126	0,238	0,100
Cs <sub>2</sub> O	1,024	1,932	0,760
Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,010	0,018	0,170
La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1,143	2,156	0,430
CeO <sub>2</sub>	2,286	4,312	0,980
Pr <sub>6</sub> O <sub>11</sub>	0,238	0,449	0,420
Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,810	1,527	1,780
Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,143	0,270	-
Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,038	0,072	-
Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,095	0,180	-
TeO <sub>2</sub>	0,258	0,487	-
ZrO <sub>2</sub>	1,759	3,317	1,400
MoO <sub>3</sub>	2,268	4,278	1,750
RuO <sub>2</sub>	1,057	-	0,670
Rh <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,108	0,204	-
PdO	-	-	0,420
CdO	0,035	0,065	-
Ag <sub>2</sub> O	0,031	0,059	-
U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	4,544	1,394	0,058
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	9,685	3,210	2,680
NiO	0,523	0,704	0,360
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,410	0,231	0,550
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	5,030
PO <sub>4</sub>	-	-	0,230
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0,478	0,451	-
SO <sub>4</sub>	-	-	0,093
ZnO	-	-	0,440



Gambar 1. Perubahan Densitas Gelas-Limbah yang Didoping Cm<sup>244</sup> [3]



Gambar 2. Laju Pelindihan Radionuklida Gelas-Limbah UK 189 Yang Didoping Dengan Cm<sup>244</sup> Dan Pu<sup>238</sup> [3]

Kualitas hasil *new ceramics* baik dan karena densitasnya besar yaitu sekitar 5,28g/cm<sup>3</sup> (untuk gelas-limbah hasil proses vitrifikasi 2,74 g/cm<sup>3</sup>), maka *new ceramics* merupakan *most compact high active waste* Ketahanan *new ceramics* yang merupakan struktur jenis *rock* (batuan) terhadap radiasi alfa sangat tinggi.

Daya tahan *synroc*-limbah terhadap radiasi alfa dipelajari dengan doping radionuklida pemancar alfa yaitu Cm<sup>244</sup> ( $t_{1/2} = 18$  tahun) dan Pu<sup>238</sup> ( $t_{1/2} = 87$  tahun)<sup>[10,11]</sup>. Kerusakan *synroc*-limbah terjadi karena peluruhan alfa, dengan timbulnya atom-atom yang terpelanting (*recoil*) yang jangkaunya sangat pendek, yaitu sekitar 20 nm. Pada umumnya kerusakan *synroc*-limbah terjadi pada fase-fase yang mengandung aktinida pemancar alfa<sup>[10]</sup>. Pada *synroc* C-limbah dan spesimen fase tunggal untuk *zirconolite* dan *perovskite* yang didoping Pu<sup>238</sup> dan Cm<sup>244</sup> (11,2 % berat Pu<sup>238</sup>O<sub>2</sub> atau 4 % berat Cm<sup>244</sup>O<sub>3</sub> dengan dosis sampai 1,5 x 10<sup>19</sup> α/g pada 27 °C, terjadi sedikit

*swelling* yang tidak berarti<sup>[10,11]</sup>. Perbedaan *swelling* pada berbagai fase tidak menyebabkan *microcracking*. Pada *synroc* kaya Na, *microcracking* teramati pada dosis 1 x 10<sup>18</sup> peluruhan α/g. Pengaruh radiasi alfa terhadap laju pelindihan radionuklida dalam *synroc* tidak berarti<sup>[10,11]</sup>.

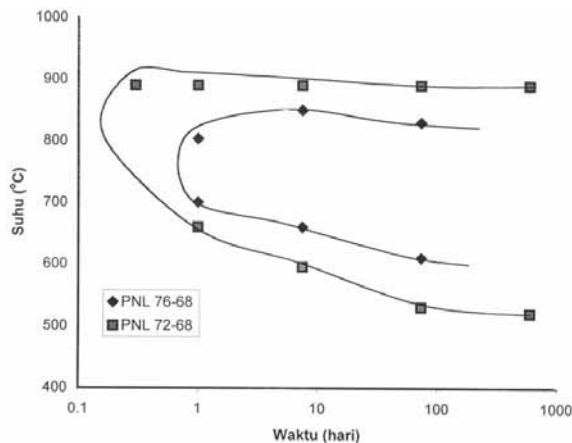
### Pengaruh Panas Akibat Radiasi Beta-Gamma Terhadap Gelas-limbah, *New Cerams*, dan *Synroc*-limbah

Pada suhu yang tinggi dan dalam waktu yang lama akan terjadi kristalisasi gelas-limbah yang disebut devitrifikasi. Dalam gelas-limbah devitrifikasi terjadi antara suhu 500 – 950 °C<sup>[3]</sup>. Karena komposisi gelas-limbah sangat kompleks, maka memungkinkan terjadinya pembentukan berbagai jenis kristal. Perubahan struktur gelas amorf menjadi kristal menaikkan laju pelindihan radionuklida dalam gelas-limbah<sup>[2,4]</sup>. Jadi radiasi beta-gamma yang dipancarkan oleh radionuklida dalam gelas tidak mengakibatkan reaksi inti yang menimbulkan perubahan komposisi, tetapi menimbulkan panas yang tinggi yang mengakibatkan perubahan struktur. Oleh karena itu, devitrifikasi harus dihindarkan dengan menggunakan sistem pendingin pada penyimpanan sementara.

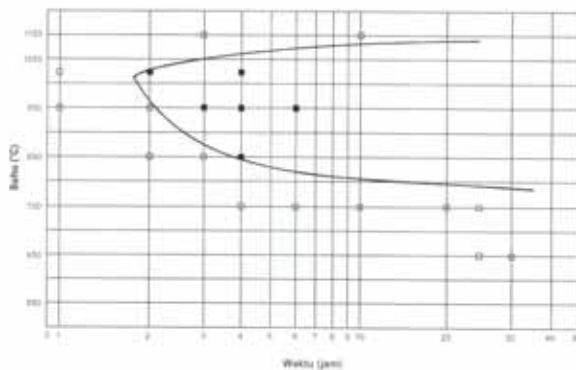
Pengaruh suhu dan lama pemanasan gelas-limbah simulasi terhadap kinetika kristalisasi, disajikan dalam diagram time-temperature-transformation (TTT). Diagram TTT gelas-limbah PNL disajikan pada Gambar 3<sup>[3]</sup>. Komposisi gelas-limbah PTLR BATAN disajikan pada Tabel 2, sedangkan diagram TTT nya disajikan pada Gambar 4<sup>[12]</sup>.

Tabel 2. Komposisi Gelas-Limbah PTLR BATAN, Kandungan Limbah 20 % Berat<sup>[12]</sup>

Oksida	Persen berat
SiO <sub>2</sub>	46,40
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	17,44
Na <sub>2</sub> O	10,00
CaO	8,95
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2,18
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3,29
NiO	0,69
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1,58
SrO	0,23
Cs <sub>2</sub> O	0,66
BaO	0,37
La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,44
CeO <sub>2</sub>	7,77



Gambar 3. Diagram TTT Untuk Beberapa Glas-Limbah Milik PNL<sup>[3]</sup>



Gambar 4. Diagram TTT Untuk Gelas-Limbah PTLR-BATAN

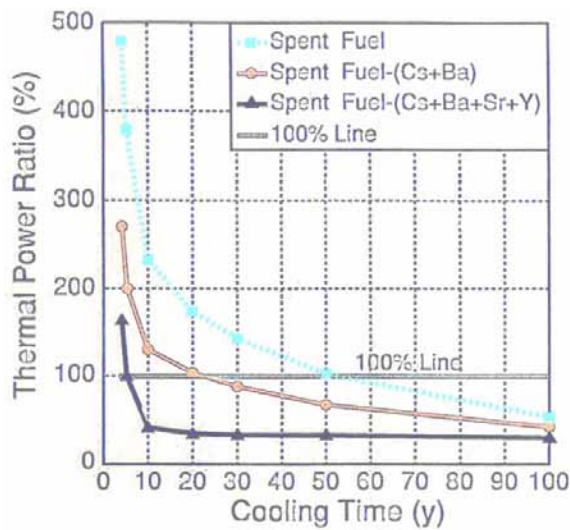
Pada Gambar 3, menunjukkan bahwa pada suhu 650 °C selama satu hari, kristalisasi belum terjadi. Pada suhu di atas 500 °C (di atas  $T_g$ ) kristalisasi terjadi dalam jangka lama. Pada suhu di atas 900 °C, kristalisasi tidak terjadi. Hal ini karena suhu tersebut telah mendekati titik leleh gelas-limbah, sehingga gerakan atom-atomnya terlalu cepat dan atom-atomnya tidak dapat mengatur diri untuk membentuk kristal. Pada Gambar 4 menunjukkan bahwa pada suhu 775 °C dan dalam waktu pemanasan selama 25 jam kristalisasi dapat terjadi. Pada suhu 750 °C kristalisasi dapat terjadi pada waktu yang lama sekali, karena suhu tersebut masih di atas  $T_g$ . Pada suhu di atas 1025 °C, kristalisasi tidak terjadi karena gerakan atom-atomnya terlalu cepat, sehingga tidak dapat mengatur diri membentuk kristal. Gelas borosilikat-limbah PTLR-BATAN dengan komposisi seperti pada Tabel 2, lebih tahan terhadap devitrifikasi karena kadar Si-nya lebih tinggi sehingga titik lelehnya lebih tinggi. Kadar Fe dan Al juga

menaikkan titik leleh. Akibatnya viskositasnya makin tinggi sehingga sukar terjadi devitrifikasi. Kadar Si gelas-limbah PTLR 46,40 %, PNL 72-68, dan PNL 76-68 masing-masing 2,18 dan 3,29 % berat, sedangkan untuk gelas-limbah PNL tidak mengandung Al dan Fe<sup>[3,12]</sup>.

Gelas-limbah PTLR-BATAN yang dipanaskan pada suhu 850 °C selama 50 jam, menunjukkan laju pelindihan sebesar 20 kali dibanding jika gelas-limbah tidak dipanaskan. Laju pelindihan radionuklida dari dalam gelas-limbah tanpa pemanasan adalah  $1,2 \times 10^{-7} \text{ g cm}^{-2} \text{ hari}^{-1}$ , sedangkan dengan pemanasan  $2,4 \times 10^{-6} \text{ g cm}^{-2} \text{ hari}^{-1}$ . Pada kondisi pemanasan tersebut prosen berat kristal yang terbentuk dalam gelas-limbah adalah 6,9 % berat.<sup>[12,13]</sup>

Pada operasi dalam skala industri untuk mencegah terjadinya devitrifikasi, maka waktu yang diperlukan untuk transportasi setelah lelehan gelas-limbah dituang dari melter ke canister sampai tempat penyimpanan harus lebih daripada waktu terjadinya kristalisasi. Pada penyimpanan sementara, gelas-limbah disimpan dengan sistem pendingin pada suhu di bawah  $T_g$  untuk mencegah terjadinya devitrifikasi. Kerusakan sistem pendingin akan mengakibatkan naiknya suhu sehingga terjadi devitrifikasi. Terjadinya devitrifikasi dapat menaikkan laju pelindihan gelas-limbah. Setelah 30 – 50 tahun, panas akibat peluruhan radiasi beta-gamma sudah jauh menurun, sehingga tidak diperlukan lagi sistem pendingin.

Pengaruh panas yang ditimbulkan radiasi beta-gamma terhadap *new ceramics* adalah kestabilannya pada suhu tinggi. Sublimasi Cs<sup>137</sup> pada 1000 °C selama 1 jam mengurangi lama penyimpanan sementara selama 27 tahun, yang ditunjukkan pada Gambar 5<sup>[6]</sup>. Ini berarti bahwa kandungan panas dalam *new ceramics* jauh lebih rendah daripada dalam gelas-limbah. Laju pelindihan radionuklida dari *new ceramics* lebih kecil daripada dari gelas-limbah hasil vitrifikasi untuk unsur Cs dan Si, sedangkan unsur Ce, Sr, dan Ba sedikit lebih tinggi<sup>[8]</sup>.



Gambar 5. Thermal Power Ratio Pendinginan Limbah Aktivitas Tinggi Selama 100 Tahun<sup>[8]</sup>

*Synroc* merupakan keramik yang strukturnya kristalin, dan mempunyai titik lebur yang sangat tinggi. Oleh karena itu pengaruh panas akibat radiasi beta gamma terhadap keramik, tidak berarti. Jadi keramik sangat tahan terhadap suhu tinggi<sup>[11]</sup>. Efek panas ini tidak mempengaruhi laju pelindihan radionuklida dari *synroc*.

### KESIMPULAN.

Efek radiasi alfa yang dipancarkan oleh aktinida yang terkandung dalam LCAT dapat menyebabkan terjadinya reaksi inti, sehingga terjadi perubahan komposisi yang dapat dideteksi dengan adanya perubahan densitas dan kekuatan mekanik gelas-limbah hasil vitrifikasi. Semakin besar dosis kumulatif yang diterima oleh gelas-limbah, densitas gelas-limbah akan semakin naik dan mencapai titik kejenuhan pada dosis kumulatif di atas  $5 \times 10^{24}$  peluruhan alfa/m<sup>3</sup>. Besarnya perubahan densitas gelas-limbah juga dipengaruhi oleh jenis gelas-limbah. Pengaruh radiasi alfa terhadap laju pelindihan radionuklida dari gelas-limbah meningkat 2 – 3 kali. *New cerams* dan *synroc* mempunyai ketahanan yang tinggi terhadap radiasi alfa, sehingga pengaruh radiasi alfa terhadap *new cerams* dan *synroc* tidak berarti. Pengaruh radiasi alfa terhadap laju pelindihan radionuklida dari *synroc* tidak berarti.

Radiasi beta-gamma yang dipancarkan oleh hasil belah yang terkandung dalam limbah dapat menaikkan suhu gelas-limbah yang dapat

menyebabkan perubahan struktur yang disebut devitrifikasi. Adanya devitrifikasi dapat meningkatkan laju pelindihan gelas-limbah. Gelas-limbah PTLR yang dipanaskan pada suhu 850 °C selama 50 jam dapat meningkatkan laju pelindihan radionuklida dari gelas-limbah sebesar 20 kalinya. Panas dari radiasi beta-gamma tidak berpengaruh terhadap *new cerams* dan *synroc* dengan struktur kristalin karena titik leburnya tinggi. Dari segi ketahanan terhadap radiasi dan panas *new cerams* dan *synroc*-limbah lebih tahan dibanding gelas-limbah.

### DAFTAR PUSTAKA.

- MARTONO H, 1999, "Report on Radioactive Waste Treatment and Disposal at Korea Atomic Energy Research Institute", Taejon, Korea.
- MENDEL J.E, 1985, "The Fixation of High Level Waste in Glasses", Pasific Northwest Laboratory, Washington,.
- IAEA, 1979, "Characteristics of Solidified High Level Waste Products", Technical Report Series No. 187, IAEA, Vienna.
- IAEA, 1985, "Chemical Durability and Related Properties of Solidified High Level Waste Form", Technical Report Series No. 257, IAEA, Vienna.
- MARTONO H, 1988, "Treatment of High Level Liquid Waste and Characterization of Waste Glass", PNC – Japan,.
- HORIE MISATO, 2002, "Super High Temperature Method", Waste Management Seminar, Arizona, USA.
- SASAKI N, 1994, "Solidification of The High Level Liquid Waste From The Tokai Reprocessing Plant", PNC, Tokai-Mura, Japan.
- HORIE MISATO, 1990, "The Study of Partitioning and Solidification with Super High Temperature Method", Tokai Work, Japan.
- E. R. VANCE, 1999, "Status of *synroc* Ceramics for High Level Waste, Proceeding of The 2<sup>nd</sup> Bianual International Workshop on High Level Radioactive Waste Management, Department of Nuclear Engineering, Fakultas of Engineering", Gadjah Mada University, Yogyakarta,.
- GUNANDJAR, 2007, "Imobilisasi Limbah Radioaktif Aktivitas Tinggi dengan Bahan

Synroc”, Gema Teknik, Majalah Ilmiah Teknik No. I/Tahun X, Fakultas Teknik, Universitas Sebelas Maret, Surakarta.

11. R. C. EWING et al, 1995, “Radiation Effects in Nuclear Waste Forms for High Level Radioactive Waste”, Program in Nuclear Energy.
12. MARTONO H, 1992, “Derajat Kristalisasi Gelas Sebagai Perangkap Limbah Cair Aktivitas Tinggi”, Hasil Penelitian Pusat Teknologi Pengelolaan Limbah Radioaktif, Serpong.
13. SURYANTORO dkk, 1995, “Pengaruh Devitrifikasi Terhadap Laju Pelucutan Gelas yang Mengandung Limbah Cair Aktivitas Tinggi Simulasi”, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, Yogyakarta.